

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日            2 0 0 3 年   3 月 2 7 日  
Date of Application:

出 願 番 号            特 願 2 0 0 3 - 0 8 7 3 3 8  
Application Number:  
[ST. 10/C]:            [ J P 2 0 0 3 - 0 8 7 3 3 8 ]

出   願   人            京セラ株式会社  
Applicant(s):

CERTIFIED COPY OF  
PRIORITY DOCUMENT

2 0 0 4 年   5 月 1 4 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康 夫

【書類名】 特許願

【整理番号】 0000302051

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 H01M 8/10

【発明者】

【住所又は居所】 鹿児島県国分市山下町 1 番 4 号 京セラ株式会社総合研  
究所内

【氏名】 松上 和人

【発明者】

【住所又は居所】 鹿児島県国分市山下町 1 番 4 号 京セラ株式会社総合研  
究所内

【氏名】 西原 雅人

【特許出願人】

【識別番号】 000006633

【住所又は居所】 京都府京都市伏見区竹田鳥羽殿町 6 番地

【氏名又は名称】 京セラ株式会社

【代表者】 西口 泰夫

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 005337

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 燃料電池セル及び燃料電池

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 複数のガス流路が形成された板状の導電性支持体の一方側主面に、内側電極、固体電解質、外側電極を順次設けてなる燃料電池セルであって、前記ガス流路が略楕円状で、前記板状の導電性支持体の厚み方向におけるガス流路の径を  $R_1$ 、前記板状の導電性支持体の厚みと直交する方向におけるガス流路の径を  $R_2$  としたとき、 $R_2 > R_1$  を満足することを特徴とする燃料電池セル。

【請求項 2】 複数のガス流路が形成された板状の支持体を兼ねる内側電極の一方側主面に、固体電解質、外側電極を順次設けてなる燃料電池セルであって、前記ガス流路が略楕円状で、前記板状の支持体を兼ねる内側電極の厚み方向におけるガス流路の径を  $R_1$ 、前記板状の支持体を兼ねる内側電極の厚みと直交する方向におけるガス流路の径を  $R_2$  としたとき、 $R_2 > R_1$  を満足することを特徴とする燃料電池セル。

【請求項 3】  $R_2$  が  $R_1$  の 1.03 倍以上であることを特徴とする請求項 1 又は 2 記載の燃料電池セル。

【請求項 4】 外側電極が、酸素側電極であることを特徴とする請求項 1 乃至 3 のうちいずれかに記載の燃料電池セル。

【請求項 5】 請求項 1 乃至 4 のうちいずれかに記載の燃料電池セルを収納容器内に複数収納してなることを特徴とする燃料電池。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、燃料電池セル及び燃料電池に関し、特に、導電性支持体内に形成されたガス流路形状に関するものである。

【0002】

【従来技術】

近年、次世代エネルギーとして、燃料電池セルのスタックを収納容器内に収納した燃料電池が種々提案されている。

## 【0 0 0 3】

図 4 は、従来の固体電解質型燃料電池の燃料電池セル 1 を示すもので、燃料電池セル 1 は、軸長方向に複数のガス流路 3 を有する多孔質の支持体を兼ねた扁平な内側電極 1 a 上の外周面に、緻密質な固体電解質 1 b、多孔質な導電性セラミックスからなる外側電極 1 c が順次形成されている。また、固体電解質 1 b、外側電極 1 c から露出した内側電極 1 a には、外側電極 1 c に接続しないようにインターコネクタ 1 d が設けられ、内側電極 1 a と電氣的に接続している。

## 【0 0 0 4】

このような燃料電池セル 1 では、燃料電池セル 1 の形状を扁平状とすることにより、燃料電池セル 1 当たりの発電部の面積を増加させることができ、発電量を増加させることができる。

## 【0 0 0 5】

燃料電池は、上記燃料電池セル 1 を収納容器内に複数収納して構成され、例えば、内側電極 1 a 内部に酸素ガス注入管 5 を通じて酸素含有ガスを供給し、外側電極 1 c に燃料ガス（水素）を供給して約 1 0 0 0℃で発電される。

## 【0 0 0 6】

この燃料電池セル 1 の内側電極 1 a と固体電解質 1 b、外側電極 1 c が重なり合っている部分が発電部であり、この発電部で発生した電流は内側電極 1 a を電流経路とし、インターコネクタ 1 d を介して他の燃料電池セル 1 へと接続される（特許文献 1 参照）。

## 【0 0 0 7】

## 【特許文献 1】

特開昭 6 3 - 2 6 1 6 7 8 号公報

## 【0 0 0 8】

## 【発明が解決しようとする課題】

このような燃料電池セル 1 では、燃料電池セル 1 の厚みを薄くすると電流経路が短くなるため、燃料電池セル 1 当たりの発電量を増加させることができるものの、燃料電池セル 1 の厚みを薄くするほど、燃料電池セル 1 の平坦部の最薄肉部 B に割れが発生する傾向にあり、信頼性を十分に確保できないといった問題があ

った。

#### 【0009】

即ち、図4の燃料電池セル1では、内側電極1aに断面形状が円状のガス流路3が形成され、しかも最薄肉部におけるガス流路3の曲率が大きいため、ガス流路3と燃料電池セル1の外表面間の厚み（最薄肉部）が、ガス流路3が形成されていない部分に比べ、薄くなり、構造的に弱くなるため、燃料電池セル1の焼成、還元処理、及び発電時に発生する応力により割れが発生しやすいという問題があった。

#### 【0010】

本発明は、歩留まりが高く、信頼性に優れた燃料電池セル及び燃料電池を提供することを目的とする。

#### 【0011】

##### 【課題を解決するための手段】

本発明の燃料電池セルは、複数のガス流路が形成された板状の導電性支持体の一方側主面に、内側電極、固体電解質、外側電極を順次設けてなる燃料電池セルであって、前記ガス流路が略楕円状で、前記板状の導電性支持体の厚み方向におけるガス流路の径を $R_1$ 、前記板状の導電性支持体の厚みと直交する方向におけるガス流路の径を $R_2$ としたとき、 $R_2 > R_1$ を満足することを特徴とする。

#### 【0012】

このような燃料電池セルでは、ガス流路の径を $R_2 > R_1$ とすることで、ガス流路と燃料電池セルの外表面間の厚みが薄くなる部分（最薄肉部）が形成されるものの、最薄肉部におけるガス流路が燃料電池セルの平坦部に対して、曲率の小さい穴形状となるため、焼成時、還元処理時及び発電時に、燃料電池セルの最薄肉部に発生する応力を緩和することができ、燃料電池セルの最薄肉部の割れの発生を抑制できる。

#### 【0013】

本発明の燃料電池セルは、複数のガス流路が形成された板状の支持体を兼ねる内側電極の一方側主面に、固体電解質、外側電極を順次設けてなる燃料電池セルであって、前記ガス流路が略楕円状で、前記板状の支持体を兼ねる内側電極の厚

み方向におけるガス流路の径を $R_1$ 、前記板状の支持体を兼ねる内側電極の厚みと直交する方向におけるガス流路の径を $R_2$ としたとき、 $R_2 > R_1$ を満足することを特徴とする。

#### 【0014】

このような燃料電池セルでは、ガス流路の径を $R_2 > R_1$ とすることで、焼成時に燃料電池セルの最薄肉部に発生する応力を緩和することができ、燃料電池セルの最薄肉部の割れの発生を抑制できる。

#### 【0015】

また、本発明の燃料電池セルは、 $R_2$ が $R_1$ の1.03倍以上であることを特徴とする。このような燃料電池セルでは、燃料電池セルの最薄肉部に発生する応力を効果的に緩和でき、燃料電池セルの最薄肉部の割れの発生を抑制できる。

#### 【0016】

また、本発明の燃料電池セルは、外側電極が、酸素側電極であることを特徴とする。

#### 【0017】

燃料電池セルの外側電極を酸素側電極とし、内側電極あるいは導電性支持体を酸素側電極よりも電気抵抗の小さい燃料側電極あるいは、導電性支持体と燃料側電極との組み合わせとすることで、燃料電池セル内の電流経路の電気抵抗を小さくすることができ、燃料電池セルの発電性能を向上できる。

#### 【0018】

本発明の燃料電池は、上記した燃料電池セルを収納容器内に複数収納してなることを特徴とする。このような燃料電池では、燃料電池セルの破損を防止できるため、信頼性に優れた燃料電池セルおよび燃料電池を提供できる。

#### 【0019】

##### 【発明の実施の形態】

本発明の燃料電池セルは、図1に示すように、断面が板状で、全体的に見て柱状の多孔質な導電性支持体33aを具備するもので、この導電性支持体33aの一方側平坦面と両端の弧状面に、多孔質な燃料側電極33b、緻密質な固体電解質33c、多孔質な導電性セラミックスからなる酸素側電極33dが順次積層さ

れている。また、前記酸素側電極 33 d と反対側の導電性支持体 33 a の平坦面に中間膜 33 e、ランタン-クロム系酸化物材料からなるインターコネクタ 33 f、P 型半導体材料からなる集電膜 33 g が形成されている。

#### 【0020】

また、本発明の燃料電池セルは、全体的に見て柱状であり、その内部には複数の略楕円状のガス流路 34 が軸長方向に形成されている。

#### 【0021】

即ち、燃料電池セル 33 は、断面形状が、幅方向両端に設けられた弧状部 m と、これらの弧状部 m を連結する一対の平坦部 a とから構成されており、一対の平坦部 a は平坦であり、ほぼ平行に形成されている。これらの燃料電池セル 33 の平坦部 a のうち一方は、導電性支持体 33 a の他方側主面上に中間膜 33 e、インターコネクタ 33 f、集電膜 33 g を形成して構成され、他方の平坦部 a は、導電性支持体 33 a の一方側主面上に燃料側電極 33 b、固体電解質 33 c、酸素側電極 33 d を形成して構成されている。

#### 【0022】

固体電解質 33 c は、導電性支持体 33 a の一方側主面から両側の弧状部 m を形成するように他方側主面にまで延設され、インターコネクタ 33 e と重畳している。

#### 【0023】

燃料側電極 33 b、固体電解質 33 c、酸素側電極 33 d が重なり合っている部分が発電部である。この発電部分は弧状部 m にまで形成されていてもかまわない。なお、燃料電池セル 33 において、平坦部 a に形成された発電部が主たる発電部である。

#### 【0024】

なお、弧状部 m は、発電に伴う加熱や冷却に伴い発生する熱応力を緩和するため、曲面となっていることが望ましい。

#### 【0025】

また、導電性支持体 33 a の長径寸法（弧状部 m-m 間方向の距離）は 15 ～ 35 mm、短径寸法（平坦部 a-a 間方向の距離）が 2 ～ 4 mm であることが望

ましい。なお、導電性支持体 33a の形状は板状と表現しているが、長径寸法および短径寸法が変化することにより楕円状あるいは扁平状とも表現できる。

#### 【0026】

また、この導電性支持体 33a は、Y、Lu、Yb、Tm、Er、Ho、Dy、Gd、Sm 及び Pr から選ばれた 1 種以上からなる希土類元素酸化物と、Ni 及び／又は NiO とを主成分とすることが望ましい。

#### 【0027】

導電性支持体 33a とインターコネクタ 33f の間に形成される中間膜 33e は、Ni 及び／または NiO と希土類元素を含有する  $ZrO_2$  を主成分とするものである。中間膜 33e 中の Ni 化合物の Ni 換算量は全量中 35～80 体積% が望ましく、さらに 50～70 体積% が望ましい。Ni を 35 体積% 以上とすることで、Ni による導電パスが増加し、中間膜 33e の伝導度が向上し、電圧降下が小さくなる。また、Ni を 80 体積% 以下とすることで、導電性支持体 33a とインターコネクタ 33f の間の熱膨張係数差を小さくすることができ、両者の界面の亀裂が発生を抑制できる。

#### 【0028】

また、電位降下が小さくなるという点から中間膜 33e の厚みは  $20\mu m$  以下が望ましく、さらに、 $10\mu m$  以下が望ましい。

#### 【0029】

中希土類元素や重希土類元素の酸化物の熱膨張係数は、固体電解質 33c の  $Y_2O_3$  を含有する  $ZrO_2$  の熱膨張係数より小さく、Ni とのサーメット材としての導電性支持体 33a の熱膨張係数を固体電解質 33c の熱膨張係数に近づけることができ、固体電解質 33c の割れや、固体電解質 33c の燃料側電極 33b からの剥離を抑制できる。熱膨張係数が小さい重希土類元素酸化物を用いることで、導電性支持体 33a 中の Ni を多くでき、導電性支持体 33a の電気伝導度を上げることができるという点からも重希土類元素酸化物を用いることが望ましい。

#### 【0030】

なお、軽希土類元素の La、Ce、Pr、Nd の酸化物は、希土類元素酸化物



の熱膨張係数の総和が固体電解質 33c の熱膨張係数未満である範囲であれば、中希土類元素、重希土類元素に加えて含有されていても何ら問題はない。

#### 【0031】

また、精製途中の安価な複数の希土類元素を含む複合希土類元素酸化物を用いることにより原料コストを大幅に下げることができる。その場合も、複合希土類元素酸化物の熱膨張係数は固体電解質 33c の熱膨張係数未満であることが望ましい。

#### 【0032】

また、インターコネクタ 33f 表面に P 型半導体、例えば、遷移金属ペロブスカイト型酸化物からなる集電膜 33g を設けることが望ましい。インターコネクタ 33f 表面に直接金属の集電部材を配して集電すると非オーム接触により、電位降下が大きくなる。オーム接触をし、電位降下を少なくするためには、インターコネクタ 33f に P 型半導体からなる集電膜 33g を接続する必要がある、P 型半導体である遷移金属ペロブスカイト型酸化物を用いることが望ましい。遷移金属ペロブスカイト型酸化物としては、ランタン-マンガン系酸化物、ランタン-鉄系酸化物、ランタン-コバルト系酸化物、又は、それらの複合酸化物の少なくとも一種からなることが望ましい。

#### 【0033】

導電性支持体 33a の主面に設けられた燃料側電極 33b は、Ni と希土類元素が固溶した  $ZrO_2$  とから構成される。この燃料側電極 33b の厚みは 1 ~ 30  $\mu m$  であることが望ましい。燃料側電極 33b の厚みを 1  $\mu m$  以上とすることで、燃料側電極 33b としての 3 層界面が十分に形成される。また、燃料側電極 33b の厚みを 30  $\mu m$  以下とすることで固体電解質 33c との熱膨張差による界面剥離を防止できる。

#### 【0034】

この燃料側電極 33b の主面に設けられた固体電解質 33c は、3 ~ 15 モル % の Y 等の希土類元素を含有した部分安定化あるいは安定化  $ZrO_2$  からなる緻密なセラミックスから構成される。希土類元素としては、安価であるという点から Y もしくは Yb が望ましい。

## 【0035】

固体電解質 33c の厚みは、 $10 \sim 100 \mu\text{m}$ であることが望ましい。固体電解質 33c の厚みを  $10 \mu\text{m}$ 以上とすることで、ガス透過を防止できる。また、固体電解質 33c の厚みを  $100 \mu\text{m}$ 以下にすることで、抵抗成分の増加を抑制できる。

## 【0036】

また、酸素側電極 33d は、遷移金属ペロブスカイト型酸化物のランタン-マンガ系酸化物、ランタン-鉄系酸化物、ランタン-コバルト系酸化物、または、それらの複合酸化物の少なくとも一種の多孔質の導電性セラミックスから構成されている。酸素側電極 33d は、 $800^\circ\text{C}$ 程度の中温域での電気伝導性が高いという点から (La, Sr) (Fe, Co)  $\text{O}_3$ 系が望ましい。酸素側電極 33d の厚みは、集電性という点から  $30 \sim 100 \mu\text{m}$ であることが望ましい。

## 【0037】

インターコネクタ 33f は、導電性支持体 33a の内外の燃料ガス、酸素含有ガスの漏出を防止するため緻密体とされており、また、インターコネクタ 33f の内外面は、燃料ガス、酸素含有ガスと接触するため、耐還元性、耐酸化性を有している。

## 【0038】

このインターコネクタ 33f の厚みは、 $30 \sim 200 \mu\text{m}$ であることが望ましい。インターコネクタ 33f の厚みを  $30 \mu\text{m}$ 以上とすることで、ガス透過を完全に防止でき、 $200 \mu\text{m}$ 以下とすることで、抵抗成分の増加を抑制できる。

## 【0039】

このインターコネクタ 33f の端部と固体電解質 33c の端部との間には、シール性を向上すべく例えば、Ni と、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ を固溶した  $\text{ZrO}_2$ とからなる接合層を介在させても良い。

## 【0040】

なお、上述した導電性支持体 33a と、内側電極 33b は、従来用いられている支持体を兼ねた内側電極に置き換えることが可能である。すなわち、導電性支持体 33a と、内側電極 33b とを、例えば、Ni と YSZ からなる燃料側電極

等から形成してもよい。

#### 【0041】

本発明の燃料電池セル33は、図1に示すように燃料電池セル33において、厚み方向のガス流路34の径を $R_1$ 、厚み方向と直交する方向のガス流路34の径を $R_2$ としたとき、 $R_2 > R_1$ の関係を満足している。即ち、ガス流路34の形状は、厚み方向に押しつぶされた様な形状であり、また、厚み方向に直交する方向に、幅広な形状とも表される。

#### 【0042】

ガス流路34を、上記の形状とすることで、焼成時に最薄肉部Bに集中していた収縮による応力が緩和され、焼成時に多発していた最薄肉部Bの割れが抑制できるようになった。

#### 【0043】

また、ガス流路34を、上記の形状とすることで、発電時にもわずかではあるが発生していた最薄肉部Bの割れを防止できるようになった。

#### 【0044】

また、 $R_2$ と $R_1$ の比率を1.03倍以上とすることで、より効果的に最薄肉部Bの割れを抑制できる。

#### 【0045】

また、ガス流路34の形状は、 $R_2 > R_1$ の関係を満足することに加え、最薄肉部Bにかかる応力を緩和するために、平坦部aに最も近いガス流路34の内壁が平坦部aと略平行に形成されていることが望ましい。

#### 【0046】

以上のような燃料電池セル33の製法について説明する。先ず、La、Ce、Pr、Ndの元素を除く希土類元素酸化物粉末とNi及び／又はNiO粉末を混合し、この混合粉末に、有機バインダーと、溶媒とを混合した導電性支持体材料を押し出し成形して、板状の導電性支持体成形体を作製し、これを乾燥、脱脂する。

#### 【0047】

なお、例えば、押し出し成形用の金型のガス流路 34 を形成するためのピンの形状を、幅広形状とすることで、容易に  $R2 > R1$  を満足させることができる。

#### 【0048】

導電性支持体成形体の乾燥の際は、図 2 に示すように導電性支持体成形体を両面から荷重板 40 で挟み、さらに重し 42 をかけることが望ましい。

#### 【0049】

なお、この荷重板 40 は溶剤を揮発させるため、多孔質であることが望ましい。また、導電性支持体成形体と荷重板 40 との間に摩擦が発生し、導電性支持体 33a の幅方向の乾燥収縮を抑制させるため、荷重板 40 の導電性支持体成形体と接する側の面は、粗面からなることが望ましい。

#### 【0050】

また、荷重板 40 を形成する材料は、仮に導電性支持体成形体に付着しても悪影響を及ぼさぬよう導電性支持体 33a に含まれる成分からなることが望ましい。なお、荷重板 40 の重量で足りるのであれば、重し 42 は必ずしも乗せる必要はない。

#### 【0051】

以上、記載した効果を十分に発揮するために、導電性支持体成形体にかかる荷重は、 $1\text{ g/cm}^2$  以上とすることが望ましく、さらに  $2.5\text{ g/cm}^2$  以上とすることが望ましい。

#### 【0052】

また、乾燥条件は、 $80^\circ\text{C} \sim 150^\circ\text{C}$  の温度範囲で、2 時間以上乾燥することが望ましい。さらに、乾燥後に、 $800 \sim 1100^\circ\text{C}$  の温度域で仮焼する。

#### 【0053】

次に、Ni 及び／又は NiO 粉末と希土類元素が固溶した  $\text{ZrO}_2$  粉末と有機バインダーと溶媒とを混合し作製した燃料側電極成形体となるスラリーを作製する。

#### 【0054】

次に、前記導電性支持体成形体の一方側平坦部 a の表面に前記燃料側電極成形体となるスラリーをメッシュ製版を用いて  $2 \sim 10\text{ }\mu\text{m}$  厚みになるように塗布し

、80～150℃の温度で乾燥する。

【0055】

次に、前記固体電解質成形体の一方側に前記燃料側電極となるスラリーを、焼成後5～15 $\mu$ mの厚みになるように塗布し、前記導電性支持体成形体の一方側平坦面の表面に前記スラリーを塗布した面が当接するように、かつ、固体電解質成形体の両端面が、他方側平坦面で所定間隔をおいて離間するように覆い巻き付け、80～150℃の温度で乾燥する。

【0056】

次に、ランタン・クロム系酸化物粉末と、有機バインダーと、溶媒を混合したインターコネクタ材料を用いてシート状のインターコネクタ成形体を作製する。

【0057】

次に、Ni及び／又はNiO粉末、希土類元素が固溶したZrO<sub>2</sub>粉末、有機バインダー、溶媒を混合した中間膜成形体となるスラリーを作製し、前記インターコネクタ成形体の片方の面に塗布する。

【0058】

次に、このシート状のインターコネクタ成形体にスラリーを塗布した面が、露出した導電性支持体成形体に当接するよう積層する。

【0059】

これにより、導電性支持体成形体の一方側平坦部aの表面に、燃料側電極成形体、固体電解質成形体を順次積層するとともに、他方の平坦部aの表面に中間膜成形体、インターコネクタ成形体が積層された積層成形体を作製する。なお、各成形体はドクターブレードによるシート成形や印刷、スラリーディップ、スプレーによる吹き付けなどにより作製することができ、または、これらの組み合わせにより作製してもよい。

【0060】

次に、積層成形体を脱脂処理し、酸素含有雰囲気中で1300～1600℃で同時焼成する。

【0061】

次に、P型半導体である遷移金属ペロブスカイト型酸化物粉末と、溶媒とを混

合し、ペーストを作製し、前記積層体をこのペースト中に浸漬し、固体電解質 3 3 b、インターコネクタ 3 3 f の表面に酸素側電極成形体、集電膜成形体をディッピングにより形成するか、または、直接スプレー塗布し、1 0 0 0 ~ 1 3 0 0 ℃で焼き付けることにより、本発明の燃料電池セル 3 3 を作製できる。

#### 【0 0 6 2】

なお、燃料電池セル 3 3 は、酸素含有雰囲気での焼成により、導電性支持体 3 3 a、燃料側電極 3 3 b、中間膜 3 3 e 中の N i 成分が、N i O となっているため、その後、導電性支持体 3 3 a 側から還元性の燃料ガスを流し、N i O を 8 0 0 ~ 1 0 0 0 ℃で還元処理する。また、この還元処理は発電時に行ってもよい。

#### 【0 0 6 3】

セルスタックは、図 3 に示すように、複数の燃料電池セル 3 3 が複数集合してなり、一方の燃料電池セル 3 3 と他方の燃料電池セル 3 3 との間に、金属フェルト及び／又は金属板からなる集電部材 4 3 を介在させ、一方の燃料電池セル 3 3 の導電性支持体 3 3 a を、該導電性支持体 3 3 a に設けられた中間膜 3 3 e、インターコネクタ 3 3 f、集電膜 3 3 g、集電部材 4 3 を介して他方の燃料電池セル 3 3 の酸素側電極 3 3 d に電氣的に接続して構成されている。

#### 【0 0 6 4】

集電部材 4 3 は、耐熱性、耐酸化性、電気伝導性という点から、P t、A g、N i 基合金、F e - C r 鋼合金の少なくとも一種からなることが望ましい。

#### 【0 0 6 5】

なお、符号 4 2 は、燃料電池セルを直列に接続するための導電部材である。

#### 【0 0 6 6】

本発明の燃料電池は、図 3 のセルスタックを、収納容器内に収納して構成されている。この収納容器には、外部から水素等の燃料ガス及び空気等の酸素含有ガスを燃料電池セル 3 3 に導入する導入管が設けられており、燃料電池セル 3 3 が所定温度に加熱されることにより発電し、使用された燃料ガス、酸素含有ガスは、収納容器外に排出される。

#### 【0 0 6 7】

なお、本発明は上記形態に限定されるものではなく、発明の要旨を変更しない

範囲で種々の変更が可能である。例えば、内側電極を酸素側電極から形成してもよい。また、酸素側電極 33d と固体電解質 33c との間に、反応防止層を形成してもよい。

#### 【0068】

また、導電性支持体 33a と内側電極 33b を同じ組成で形成してもよく、例えば、Ni と  $Y_2O_3$  を固溶した  $ZrO_2$  を用いてもよい。この場合には、導電性支持体 33a と内側電極 33b とが、支持体を兼ねる内側電極に置き換えられることになる。

#### 【0069】

また、酸素側電極 33d、集電膜 33g の成形法も種々の方法を用いてもよいことは勿論である。

#### 【0070】

##### 【実施例】

先ず、NiO 粉末を Ni 金属換算で 48 体積%、 $Y_2O_3$  粉末を 52 体積%となるよう混合し、この混合物に、ポアー剤と、セルロース系バインダーからなる有機バインダーと、水からなる溶媒とを加え、混合した導電性支持体材料を押出成形して、板状の導電性支持体成形体を作製した。

#### 【0071】

なお、押し出し成形の際に、導電性支持体成形体の穴形状を R1、R2 が、表 1 に示す比率になるよう変化させた。これらの導電性支持体成形体を 130℃の条件で、乾燥した。

#### 【0072】

この導電性支持体成形体を用いて、焼成後に長さが 200mm となるように導電性支持体成形体を加工し、1000℃で仮焼した。

#### 【0073】

次に、8YSZ 粉末 ( $Y_2O_3$  を 8 モル含有する  $ZrO_2$ ) にアクリル系バインダーとトルエンを加え、固体電解質成形体となるスラリーを作製し、ドクターブレード法にてシート状の固体電解質成形体を作製した。

#### 【0074】

次に、NiO粉末を金属Ni換算量で48体積%、8YSZ粉末( $Y_2O_3$ を8モル含有する $ZrO_2$ )を52体積%となるように混合し、アクリル系バインダーとトルエンを加え、燃料側電極成形体となるスラリーを作製した。

#### 【0075】

この燃料側電極成形体となるスラリーを、前記導電性支持体成形体の一方側平坦面の表面にメッシュ製版を用いて、厚みが $5\mu m$ となるよう塗布し、 $130^\circ C$ の温度で乾燥した。

#### 【0076】

また、上記燃料側電極成形体となるスラリーを、厚みが焼成後 $10\mu m$ となるよう前記固体電解質成形体にスクリーン印刷し、 $130^\circ C$ の温度で乾燥した。

#### 【0077】

次に、燃料側電極成形体を形成した導電性支持体成形体の一方側の平坦面に、燃料側電極成形体となるスラリーが塗布された固体電解質成形体のスラリーが塗布された側の面が当接し、その両端間が他方側平坦面で所定間隔をおいて離間するように巻き付け、乾燥した。

#### 【0078】

次に、ランタン-クロム系酸化物粉末と、有機バインダーと、溶媒を混合したインターコネクタ材料を用いてシート状のインターコネクタ成形体を作製した。

#### 【0079】

次に、Ni及び/又はNiO粉末、希土類元素が固溶した $ZrO_2$ 粉末、有機バインダー、溶媒を混合した中間膜成形体となるスラリーを作製し、前記インターコネクタ成形体の片方の面に塗布した。

#### 【0080】

次に、このシート状のインターコネクタ成形体にスラリーを塗布した面が、露出した導電性支持体成形体に当接するよう積層した。

#### 【0081】

次に、この積層体を脱バインダ処理し、大気中にて $1500^\circ C$ で同時焼成した。

#### 【0082】



次に、 $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_3$  粉末と、ノルマルパラフィンからなる溶媒とから、酸素側電極スラリーを作製し、このスラリーを仮焼した固体電解質シート状成形体の表面に吹き付け、酸素側電極成形体を形成し、また、上記スラリーを焼成したインターコネクタ 3 3 e の外面に塗布し、 $1150^\circ\text{C}$  で焼き付け、酸素側電極 3 3 d を形成するとともに、インターコネクタ 3 3 f の外面に集電膜 3 3 g を形成し、図 1 に示すような本発明の燃料電池セル 3 3 を作製した。

#### 【0083】

なお、導電性支持体 3 3 a の長径（m-m 間方向の距離）は 26 mm、短径は 3.5 mm（a-a 間方向の距離）、燃料側電極 3 3 b と酸素側電極 3 3 d の間に形成された固体電解質 3 3 c の厚みは  $40\ \mu\text{m}$ 、酸素側電極 3 3 d の厚みは  $50\ \mu\text{m}$ 、燃料側電極 3 3 b の厚みは  $10\ \mu\text{m}$ 、インターコネクタ 3 3 f の厚みは  $50\ \mu\text{m}$ 、集電膜 3 3 g の厚みは  $50\ \mu\text{m}$  であった。また、それぞれの燃料電池セル 3 3 の両端部にはそれぞれ 15 mm の非発電部を形成した。

#### 【0084】

次に、燃料電池セル 3 3 の内部に、水素ガスを流し、 $850^\circ\text{C}$  で、導電性支持体 3 3 a 及び燃料側電極 3 3 b の還元処理を施した。

#### 【0085】

得られた燃料電池セル 3 3 のガス流路 3 4 に燃料ガスを流通させ、燃料電池セル 3 3 の外側に酸素含有ガスを流通させ、燃料電池セル 3 3 をガスバーナーを用いて  $850^\circ\text{C}$  まで加熱し、発電試験を行った。

#### 【0086】

燃料電池セル 3 3 の平坦部 a における最薄肉部 B について、R2/R1 と同時焼成時、最終焼成時、還元時、発電試験時に発生した割れや剥離の有無とを確認し、表 1 に示した。

#### 【0087】

なお、同時焼成以降の試料は、各々の条件で 40 本作製した。

#### 【0088】

【表 1】

試料No.	R2/R1 (焼成後)	割れ発生			
		同時焼成時	最終焼成時	還元時	発電試験時
*1	1.00	8/40	4/32	4/28	2/24
2	1.03	3/40	2/37	1/35	0/34
3	1.10	1/40	1/39	1/38	0/37
4	1.26	0/40	0/40	0/40	0/40
5	1.52	0/40	0/40	0/40	0/40
6	2.03	0/40	0/40	0/40	0/40
7	3.03	0/40	0/40	0/40	0/40

\* 印は、本発明の範囲外の試料である。

## 【0089】

表 1 に示すように、燃料電池セル 33 の  $R2/R1 = 1$  であり、本発明の範囲外の試料 No. 1 では、40 本の試料のうち、同時焼成時に 8 本、最終焼成時に 4 本、還元時に 4 本、発電試験時に 2 本の割れによる不良がでた。最終的には、40 本のうち、18 本の燃料電池セル 33 の最薄肉部 B に割れや、クラックが確認され、歩留まりが低く、また、燃料電池セル 33 の信頼性も低いことが判る。

## 【0090】

一方、 $R2/R1$  が 1.03 である本発明の試料 No. 2 では、同時焼成時、最終焼成時、還元時、発電試験時を通して発生した割れは、6 本であり、不良の発生を半減させることができた。また、発電試験時の割れの発生は、確認できず、信頼性が大幅に向上した。

## 【0091】

また、 $R2/R1$  が 1.10 である本発明の試料 No. 3 では、同時焼成時、最終焼成時、還元時、発電試験時を通して発生した割れは、3 本であり、不良の発生を大幅に減少でき、また、発電試験時の割れもなく、信頼性が大幅に向上した。

## 【0092】

また、さらに  $R2/R1$  が 1.26 以上である本発明の試料 No. 3～7 では、同時焼成時、最終焼成時、還元時、発電試験時を通して発生した割れは、いず

れも 0 本であり、不良の発生を抑制でき、また、信頼性を大幅に向上できた。

【 0 0 9 3 】

【発明の効果】

本発明によれば、歩留まりが高く、信頼性に優れた燃料電池セル、燃料電池及びその製造方法を提供できる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

本発明の燃料電池セルを示す断面斜視図である。

【図 2】

本発明の導電性支持体の乾燥方法を示す横断面図である。

【図 3】

本発明のセルスタックを示す横断面図である。

【図 4】

従来の燃料電池セルを示す横断面図である。

【符号の説明】

3 3 . . . 燃料電池セル

3 3 a . . . 導電性支持体

3 3 b . . . 内側電極、燃料側電極

3 3 c . . . 固体電解質

3 3 d . . . 外側電極、酸素側電極

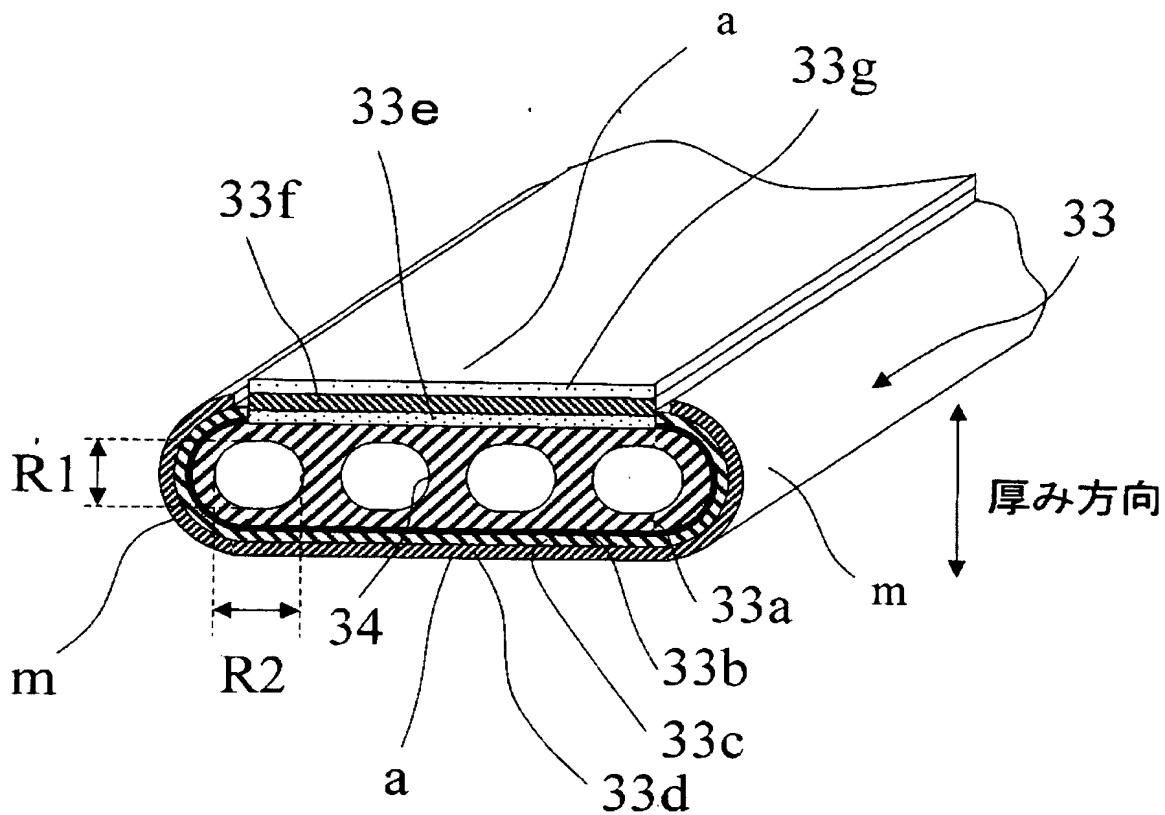
3 4 . . . ガス流路

R 1 . . . 導電性支持体の厚み方向におけるガス流路の径

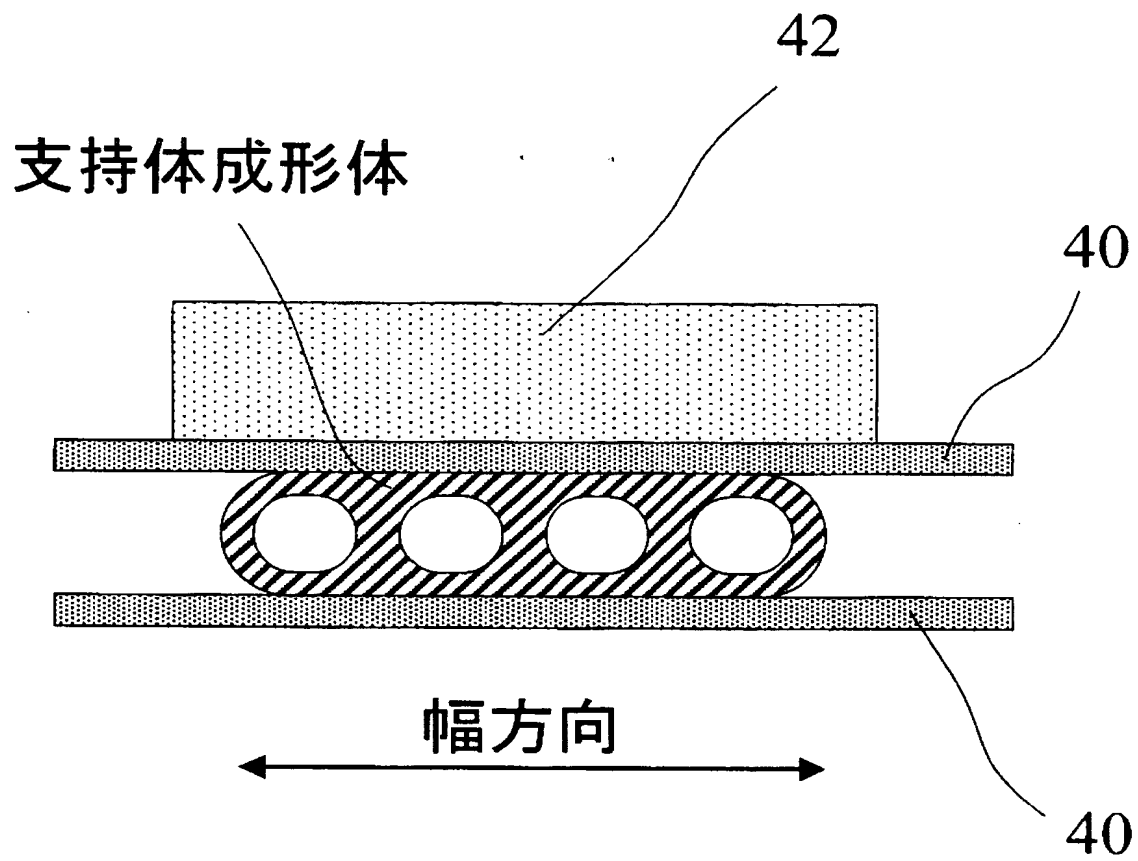
R 2 . . . 導電性支持体の厚みと直交する方向におけるガス流路の径

【書類名】 図面

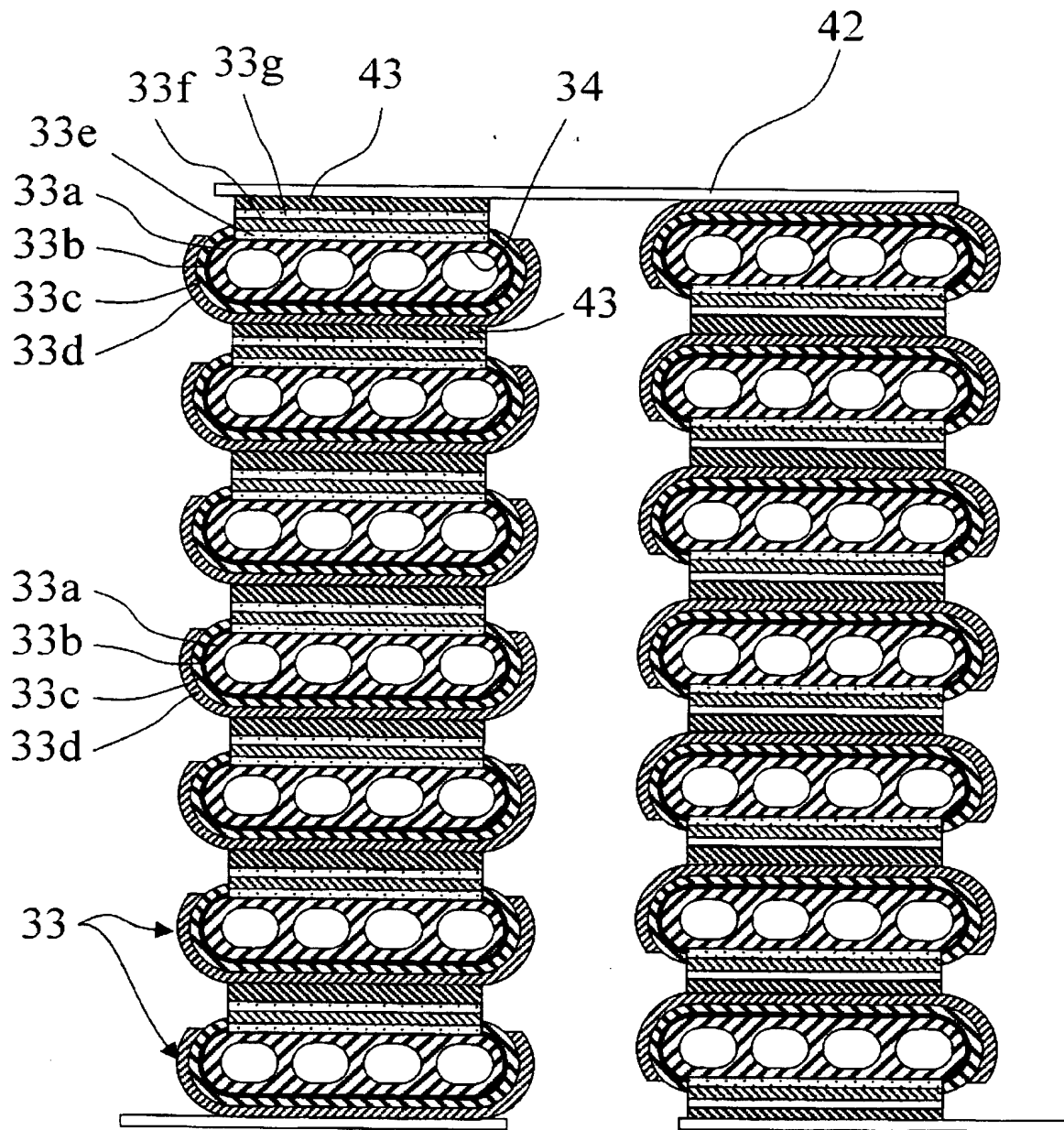
【図 1】



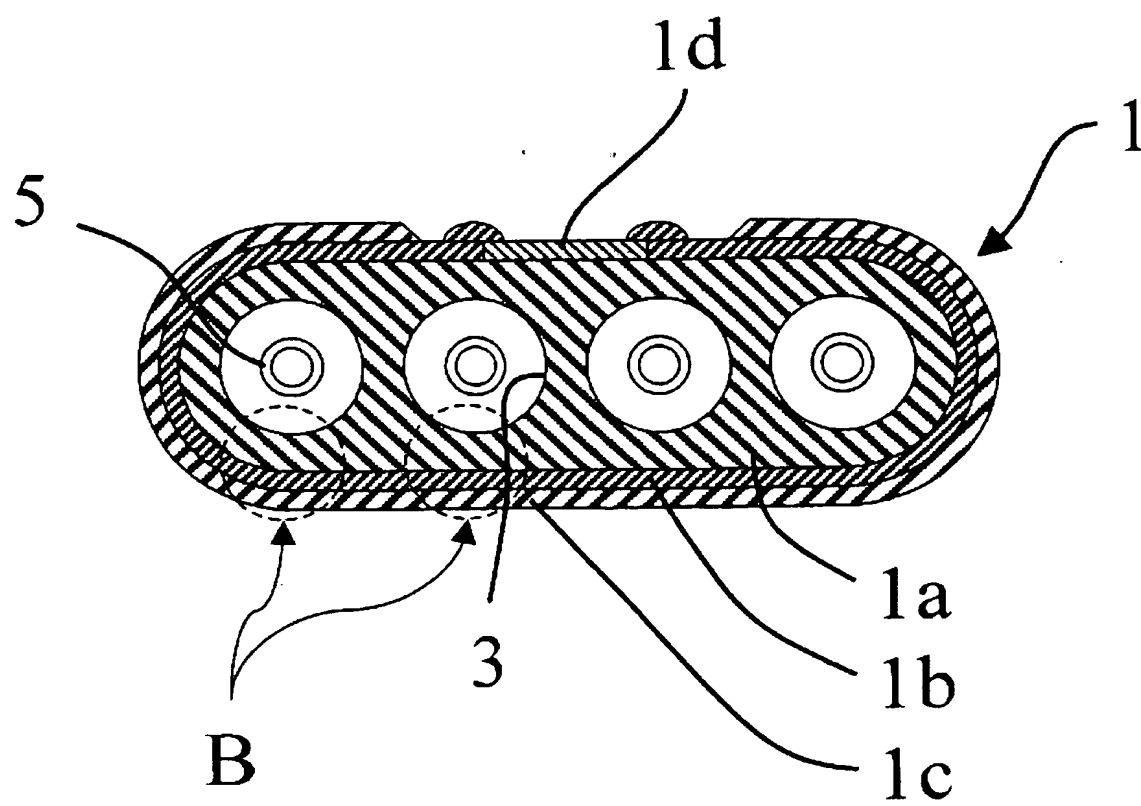
【図 2】



【図 3】



【図 4】



**【書類名】 要約書****【要約】**

**【課題】** 本発明は、燃料電池セルの歩留まりを向上させ、信頼性が高く、発電能力の高い燃料電池セル及び燃料電池を提供することを目的とする。

**【解決手段】** 複数のガス流路 3 4 が形成された板状の導電性支持体 3 3 a の一方側主面に、内側電極 3 3 b、固体電解質 3 3 c、外側電極 3 3 d を順次設けてなる燃料電池セル 3 3 であって、前記ガス流路 3 4 が略楕円状で、前記板状の導電性支持体 3 3 a の厚み方向におけるガス流路 3 4 の径を  $R_1$ 、前記板状の導電性支持体 3 3 a の厚みと直交する方向におけるガス流路 3 4 の径を  $R_2$  としたとき、 $R_2 > R_1$  を満足することを特徴とする。

**【選択図】** 図 1



認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2 0 0 3 - 0 8 7 3 3 8
受付番号	5 0 3 0 0 5 0 2 7 9 0
書類名	特許願
担当官	第五担当上席 0 0 9 4
作成日	平成 1 5 年 3 月 2 8 日

< 認定情報・付加情報 >

【提出日】	平成 15 年 3 月 27 日
-------	------------------

次頁無

特願 2 0 0 3 - 0 8 7 3 3 8

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [ 0 0 0 0 0 6 6 3 3 ]

1. 変更年月日	1 9 9 8 年 8 月 2 1 日
[変更理由]	住所変更
住 所	京都府京都市伏見区竹田鳥羽殿町 6 番地
氏 名	京セラ株式会社

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☒ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**